

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-221479  
 (43)Date of publication of application : 09.08.2002

(51)Int.CI. G01N 15/02

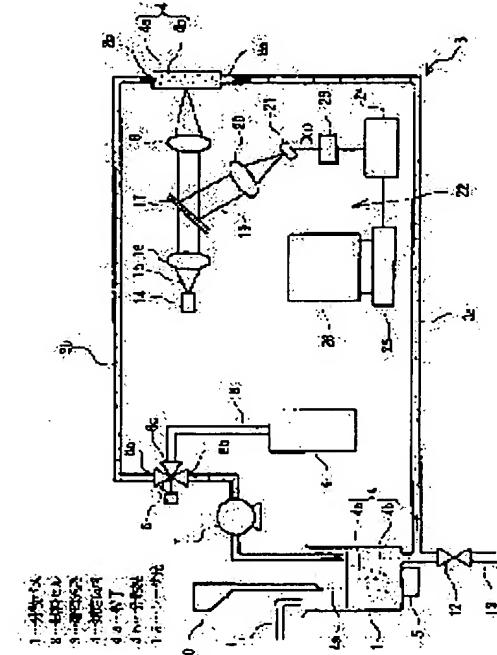
(21)Application number : 2001-016083 (71)Applicant : HORIBA LTD  
 (22)Date of filing : 24.01.2001 (72)Inventor : UMEZAWA MAKOTO  
 YAMAGUCHI TETSUJI

## (54) DIAMETER DISTRIBUTION MEASURING APPARATUS FOR DYNAMICALLY LIGHT SCATTERING PARTICLE

### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a diameter distribution measuring apparatus for dynamically light scattering particle which measures a concentration of a sample used for measuring before measuring a particle diameter distribution, automatically dilutes the sample until the predetermined concentration for measuring is attained, and can efficiently perform the predetermined particle diameter distribution measurement.

**SOLUTION:** In the diameter distribution measuring apparatus for dynamically light scattering particle in which a measured sample 4 that is a dispersing medium 4b with dispersed particles 4a is accommodated in a sample cell 2 and a laser light 15 irradiates the measured sample 4 and the particle diameter distribution is found based on an intensity distribution in frequency of the light scattered by the particles 4a, the dispersing medium 4b and the dispersed particles 4a are supplied, a dispersing bus 1 for dispersing the dispersed particles 4a in the dispersing medium 4b and the sample cell 2 are connected through a circularly flowing path 3, the measured sample 4 is supplied from the dispersing bus 1 to the sample cell 2 prior to the particle diameter distribution measurement, the laser light 15 irradiates the measured sample 4, the concentration of the measured sample 4 is measured based on an obtained intensity of a scattered light, the measured concentration is compared with a preset target concentration, and a concentration adjustment of the measured sample 4 can be performed based on a result of the comparison.



### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

## \* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## DETAILED DESCRIPTION

---

### [Detailed Description of the Invention]

[0001]

[The technical field to which invention belongs] This invention relates to a dynamic-light-scattering type particle-size-distribution measuring device.

[0002]

[Description of the Prior Art] There are some which use a dynamic-light-scattering type particle-size-distribution measuring device for one of the particle-size-distribution measuring methods. This dynamic-light-scattering type particle-size-distribution measuring device holds the test portion which distributed the particle in the dispersion medium in the sample cell, and irradiates a laser beam to this test portion, particle size distribution is search for based on the frequency intensity distribution of the light scattered about by said particle, and, in addition to a conventional organic pigment, the conventional ceramics, etc., the needs in a semiconductor wafer, the abrasive material of a hard disk, and the site of research and development of advanced materials, such as an ink jet printer, are increase in recently.

[0003]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] By the way, while the so-called batch processing of the above-mentioned dynamic-light-scattering type particle-size-distribution measuring device which supplies a test portion to a sample cell was in use in the former at every measurement, since the measurable concentration of a measuring device needed to be dramatically low, the low-concentration thing or the low-concentration high-concentration thing as a test portion needed to be diluted and it needed to use, the technique of diluting a sample automatically even to the concentration of a measurable range might be adopted. This is considered that there is that cause also in having had many know how measured by dilution, and data bases in the user using this kind of equipment in the former.

[0004] And it faced diluting said sample, the sample was extracted quantitatively conventionally, and the method of pouring in a diluent quantitatively so that it may be called 100 times or 1000 times to this sample was adopted.

[0005]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] However, it is the object to carry out dilution adjustment of the test portion at the measurable concentration of a measuring device, and the above-mentioned technique will be measured as [carrier beam] in the effect of the condensation by dilution in the sample (particle) which is easy to condense, and also when becoming the measurement in the condition of having differed from the busy condition in the actual site of a particle, there was. And if particle-size-distribution measurement is performed after said condensation has arisen, even if it produces a big change about scattered-light reinforcement or dilutes, scattered-light reinforcement will become feeble, and that predetermined measurement cannot be performed will arise.

[0006] It is offering the dynamic-light-scattering type particle-size-distribution measuring device which enabled it to perform predetermined particle-size-distribution measurement efficiently as this invention was made with careful attention to the above-mentioned matter, that object's measured the sample concentration with which measurement is presented before particle-size-

distribution measurement, and diluted a sample automatically until it reaches desired measurement concentration.

[0007]

[Means for Solving the Problem] In order to attain the above-mentioned object, in this invention, a test portion which distributed a particle in a dispersion medium is held in a sample cell. In a dynamic-light-scattering type particle-size-distribution measuring device which searched for particle size distribution based on frequency intensity distribution of light which irradiated a laser beam to this test portion, and was scattered about by said particle While connecting a distributed bus and said sample cell for said dispersion medium and particle being supplied and distributing a particle in a dispersion medium on a circulating flow way In advance of particle-size-distribution measurement, a test portion is supplied from said distributed bus to a sample cell. A laser beam is irradiated to this test portion, concentration of said test portion is measured based on scattered-light reinforcement then obtained, and it enables it to perform concentration adjustment of said test portion based on this comparison result as compared with aim concentration beforehand set up in this measured concentration.

[0008] In the above-mentioned dynamic-light-scattering type particle-size-distribution measuring device, a sample with which measurement is presented can be automatically diluted to concentration (or density range) to dilute. And since concentration can be checked preventing a change of state of a sample by dilution, it is not diluting too much or lack of dilution is not produced.

[0009]

[Embodiment of the Invention] The gestalt of implementation of invention is explained referring to a drawing. Drawing 1 – drawing 5 show one example of this invention. First, drawing 1 shows roughly an example of the dynamic-light-scattering type particle-size-distribution measuring device of this invention, in this drawing, 1 is a distributed bus, 2 is a sample cell, and both 1 and 2 are connected on the circulating flow way 3.

[0010] It consists of a cylinder-like cistern, and particle 4a which is a measuring object sample, and dispersion-medium 4b which distributes this are mixed, it considers as a test portion 4, the ultrasonic vibrator 5 which vibrates with an oscillator is formed in the bottom outside section, and it is made for said distributed bus 1 to have it prevented that particle 4a condenses in the distributed bus 1.

[0011] Said sample cell 2 consists of the so-called flow cell, sample entrance 2a is formed in the end, and sample outlet 2b is formed in the other end.

[0012] Outward trip pipe 3a by which the end was connected to the pars basilaris ossis occipitalis of the distributed bus 1, and the other end was connected to sample entrance 2a of a sample cell 2, and an end are connected to sample outlet 2b of a sample cell 2, and said circulating flow way 3 consists of return trip pipe 3b in which the other end carries out a opening into the distributed bus 1 in the upper part of the distributed bus 1.

[0013] If the configuration by the side of said distributed bus 1 is explained, the three-way-type solenoid valve 6 and the pump 7 for circulation are formed in the downstream of return trip pipe 3b, the 1st and 2nd port 6a and 6b is connected to return trip pipe 3b, respectively, and, as for the three-way-type solenoid valve 6 located more in the upstream, the dispersion-medium depot 9 is connected to the 3rd port 6c through the pipe 8. And at for example, the time of power supply OFF, Ports 6b and 6c are open for free passage, and at the time of power supply ON, the three-way-type solenoid valve 6 is constituted so that Ports 6a and 6b may be open for free passage. Moreover, the particle feed hopper 10 which supplies particle 4a by which weighing capacity was carried out separately in the distributed bus 1, and the dispersant supply pipe 11 which supplies a dispersant in the distributed bus 1 are formed in the upper part of the distributed bus 1. Furthermore, multipoint connection of the drain pipe 13 equipped with the closing motion valve 12 is carried out to the portion near the pars basilaris ossis occipitalis of the distributed bus 1 of outward trip pipe 3a.

[0014] In addition, as said dispersion-medium 4b, although liquids, such as water (pure water), ethanol, and an oil, are used, for example, it is properly used suitably according to the class of particle 4a which is the measuring object. Moreover, make particle 4a easy to distribute in

dispersion-medium 4b, and particles, such as a surfactant, are made to repel, for example, said dispersant is supplied by the need.

[0015] And if the configuration by the side of said sample cell 2 is explained, 14 is the laser light source prepared in the 1 side of a sample cell 2, and the lens 16 which collimates the laser beam 15 from a laser light source 14, the beam splitter 17, and the condenser lens 18 are formed in the optical path between this laser light source 14 and sample cell 2 in this order. The hole with which said beam splitter 17 passes a laser beam 15 in the center is prepared. It is prepared so that the reflector may consist of a mirror formed in the sample cell 2-way and the optical axis of a laser beam 15 and the angle of 45 degrees which emitted the laser light source 14 may be made. It is constituted so that the laser beam 15 which passed said hole may bend the interference light 19 produced by the Doppler shift of the scattered light by particle 4b in a sample cell 2 whenever [ proper 90 degrees or less angle ] and may reflect. And the lens 20 which condenses this, and the photodetector 21 which changes said interference light 19 into the electric detecting signal D (t) are formed in the optical path of the interference light 19 reflected by the mirror 17.

[0016] moreover, control the signal-processing section 23 which 22 is the signal-processing section, and amplifies the output D of said photodetector 21 (t) as occasion demands, and carries out transform processing to a digital signal, CPU24 which carries out data processing of the detecting signal D (t) outputted from this signal-processing section 23, and searches for particle size distribution, and each part of equipment, or It consists of a personal computer 25 which performs various processings, such as an image processing for displaying the processing result in said CPU24, and processing results, such as particle size distribution, are displayed on a personal computer 25, or the display 26 for displaying various kinds of control screens is attached to it.

[0017] Next, actuation of the dynamic-light-scattering type particle-size-distribution measuring device of the above-mentioned configuration is explained, also referring to drawing 2 – drawing 5. The dynamic-light-scattering type particle-size-distribution measuring device of this example performs the following actuation automatically according to the program in which it is contained by the personal computer 25.

[0018] (1) First, make the closing motion valve 12 into a closed state, and supply particle 4a and dispersion-medium 4b by which weighing capacity was carried out in the distributed bus 1 (step S1 of drawing 2 ). When the charge of dispersion-medium 4b carries out time amount ON of the pump 7 suitably in the condition (condition which Ports 6b and 6c are opening for free passage) that the three-way-type solenoid valve 6 is off, dispersion-medium 4b of an amount is suitably supplied in the distributed bus 1. At this time, the optimum dose charge of the dispersant may be carried out if needed.

[0019] (2) When the three-way-type solenoid valve 6 is turned ON, Kaisei of the circulating flow way 3 is carried out and it turns on a pump 7 by making Ports 6a and 6b open for free passage Particle 4a and dispersion-medium 4b in the distributed bus 1 As it returns to the distributed bus 1 through outward trip pipe 3a, a sample cell 2, return trip pipe 3b, the three-way-type solenoid valve 6, and a pump 7, it circulates through the inside of the circulating flow way 3, and it becomes the test portion 4 by which particle 4a distributed in dispersion-medium 4b, and stirring mixing was fully carried out by this (step S2 of drawing 2 ). In this case, an ultrasonic vibrator 5 is operated and you may make it prevent that particle 4a condenses in the distributed bus 1.

[0020] (3) Turn ON a laser light source 14 and after circulating through said test portion 4 suitably and fully carrying out stirring mixing of this, where a pump 7 is turned OFF, irradiate a laser beam 15 at the test portion 4 in a sample cell 2. That is, the laser beam 15 which came out of the laser light source 14 condenses in a sample cell 2 through a collimate lens 16, a beam splitter 17, and a condenser lens 18. At this time, the laser beams (scattered light) which carried out the Doppler shift by said Brownian motion are scattered about in particle 4a which some laser beams pass through a cell wall side, distributes them in dispersion-medium 4b, and carries out Brownian motion. On the other hand, some laser beams are scattered about in respect of a cell wall (non-scattered light), and the laser beam of the frequency of a basis goes to hard flow.

It interferes each other in said scattered light and non-scattered light, they turn into an interference light, and condense on a photodetector 21 through a condenser lens 18, a beam splitter 17, and a lens 20.

[0021] Said interference light is changed into the electric detecting signal D (t) in a photodetector 21, in the signal-processing section 23, it is processed suitably, and the digitized light-scattering data is incorporated by CPU24. As shown in drawing 3, said light-scattering data has the amplitude Am according to the concentration of a test portion 4, and can obtain the concentration (measurement concentration) of a test portion 4 based on this amplitude Am (step S3 of drawing 2). In addition, in CPU24, the fast Fourier transform of said light-scattering data is carried out, it asks for a power spectrum, and you may make it search for the particle-size-distribution condition of particle 4a based on this power spectrum.

[0022] And in a personal computer 25, a measurement person in charge sets up aim concentration (voltage value) using the screen shown in drawing 4. Drawing 4 shows an example of the screen in the display 26 when performing automatic concentration adjustment, and the voltage value showing aim concentration is 12.50V in this example. And said measurement concentration is measured with aim concentration (step S4 of drawing 2). Here, as shown in drawing 5, when measurement concentration (measurement concentration voltage) is in agreement with aim concentration (aim concentration voltage), it means that adjustment of test portion concentration was completed (step S5 of drawing 2), and shifts to particle-size-distribution measurement. As explained above (3), this particle-size-distribution measurement turns ON a laser light source 14, irradiates a laser beam 15 at the test portion 4 in a sample cell 2, and should just search for particle size distribution based on the frequency intensity distribution of the light scattered about by the particle 4a particle then acquired.

[0023] On the other hand, when said measurement concentration is not in agreement with aim concentration, as shown in drawing 2, it is necessary to perform concentration adjustment of return and a test portion 4 to step S2 further. That is, as shown in the example of a screen of drawing 6, when larger like 12.50V than aim concentration (aim concentration voltage) 10.50V, said measurement concentration (measurement concentration voltage) sets up a dilution scale factor, and adjusts a test portion 4.

[0024] After opening the closing motion valve 12 about 1 to 2 seconds and specifically discharging a part of test portion 4 in the distributed bus 1, from the dispersion-medium depot 9, dispersion-medium 4b equal to this discharge is supplied to the distributed bus 1, and is diluted. At this time, amount supply of the dispersant may be carried out suitably. Then, let the test portion 4 which consists of particle 4a and dispersion-medium 4b be the test portion 4 by which stirring mixing was fully carried out by circulating the circulating flow way 3 by the technique indicated above (2).

[0025] And as shown in step S3, the concentration of a test portion 4 is measured again.

[0026] Hereafter, the above-mentioned activity is repeated until the concentration of a test portion 4 turns into aim concentration. In addition, what is necessary is just to add particle 4a to the distributed bus 1, when the concentration of a test portion 4 is smaller than aim concentration. Moreover, as aim concentration, some tolerance of \*\* is prepared, and when measurement concentration enters in the tolerance of this aim concentration, it may be made to shift to particle-size-distribution measurement.

[0027] As mentioned above, in the dynamic-light-scattering type particle-size-distribution measuring device of this invention, since it has diluted checking the concentration of a test portion 4 based on scattered-light reinforcement, and checking whether there is any sample concentration within measurable limits in advance of particle-size-distribution measurement, it is not diluting too much or the lack of dilution is not produced. And since particle-size-distribution measurement can be performed after the test portion 4 has become predetermined concentration, the high measurement result of precision can be obtained and predetermined particle-size-distribution measurement can be performed efficiently.

[0028] Since the distributed bus 1 and a sample cell 2 can be connected by the circulating flow way 3 and repeat circulation of the inside of the circulating flow way 3 can be especially carried out for a test portion 4, while mixed stirring of particle 4a and dispersion-medium 4b is ensured,

change of the particle size by condensation and the abrupt change of the scattered-light reinforcement accompanying it can be controlled.

[0029] in addition -- as the dilution method of a test portion 4 -- concentration -- quantitative -- every [ of 2 / a multiple ] -- you may make it dilute That is, it acts as the monitor of the amount of the test portion 4 in the distributed bus 1 by the sensor (not shown) formed in the distributed bus 1, moiety wastewater is carried out, two fold serial dilution of the dispersion-medium 4b of this discharge and tales doses is supplied and carried out, and you may make it ask this two fold serial dilution for a dilution scale factor simply from a count.

[0030]

[Effect of the Invention] As explained above, it sets to the dynamic-light-scattering type particle-size-distribution measuring device of this invention. While connecting a distributed bus and a sample cell on a circulating flow way, particle-size-distribution measurement is preceded. Supply a test portion from an account distribution bus to a sample cell, and a laser beam is irradiated to this test portion. Since it enables it to perform concentration adjustment of said test portion based on this comparison result as compared with the aim concentration which measures the concentration of said test portion based on the scattered-light reinforcement then obtained, and is beforehand set up in this measured concentration It is efficient even to the concentration which wants to dilute a test portion, and can dilute with uninhabited automatically. And concentration can be checked, preventing the change of state by dilution, therefore desired particle-size-distribution measurement can be performed in the optimal concentration condition, and high measurement of precision can be performed efficiently.

---

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

**CLAIMS**

---

**[Claim(s)]**

[Claim 1] In a sample cell, hold a test portion which distributed a particle in a dispersion medium, and a laser beam is irradiated to this test portion. In a dynamic-light-scattering type particle-size-distribution measuring device which searched for particle size distribution based on frequency intensity distribution of light scattered about by said particle While connecting a distributed bus and said sample cell for said dispersion medium and particle being supplied and distributing a particle in a dispersion medium on a circulating flow way In advance of particle-size-distribution measurement, a test portion is supplied from said distributed bus to a sample cell. Irradiate a laser beam to this test portion, and concentration of said test portion is measured based on scattered-light reinforcement then obtained. A dynamic-light-scattering type particle-size-distribution measuring device characterized by enabling it to perform concentration adjustment of said test portion based on this comparison result as compared with aim concentration beforehand set up in this measured concentration.

---

[Translation done.]

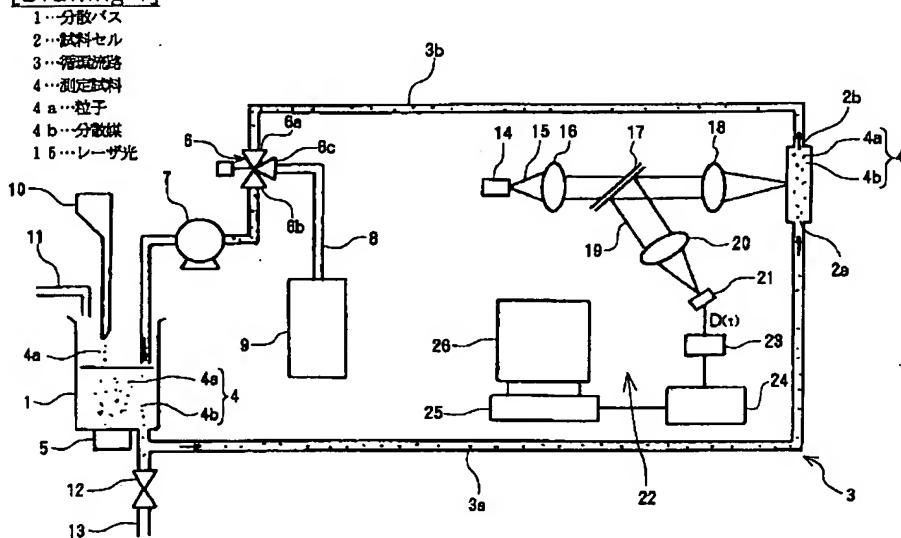
## \* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

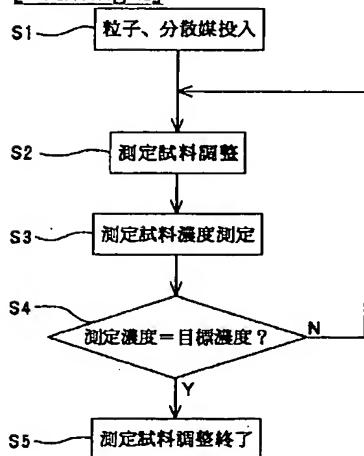
1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## DRAWINGS

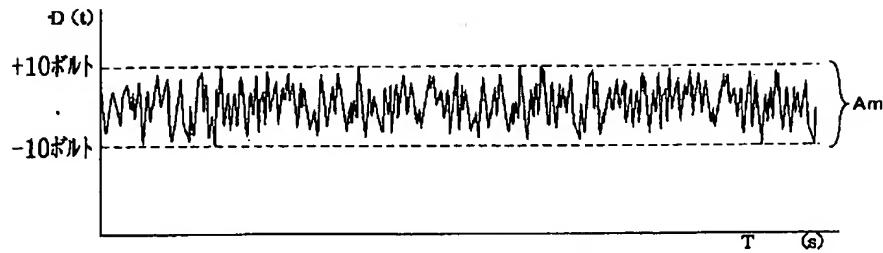
## [Drawing 1]



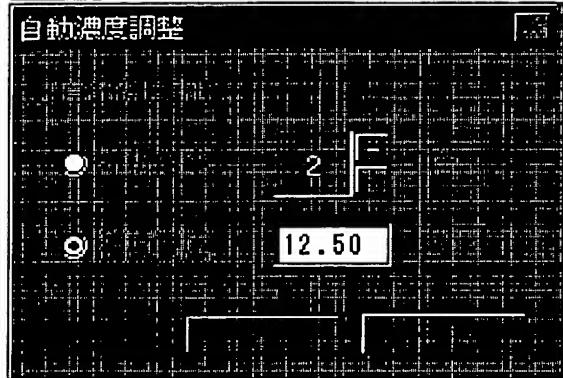
## [Drawing 2]



## [Drawing 3]



[Drawing 4]



[Drawing 5]



[Drawing 6]




---

[Translation done.]

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号  
特開2002-221479  
(P2002-221479A)

(43)公開日 平成14年8月9日(2002.8.9)

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>  
G 0 1 N 15/02

識別記号

F I  
G 0 1 N 15/02

テマコード(参考)  
A

審査請求 未請求 請求項の数1 O L (全 5 頁)

(21)出願番号 特願2001-16083(P2001-16083)

(22)出願日 平成13年1月24日(2001.1.24)

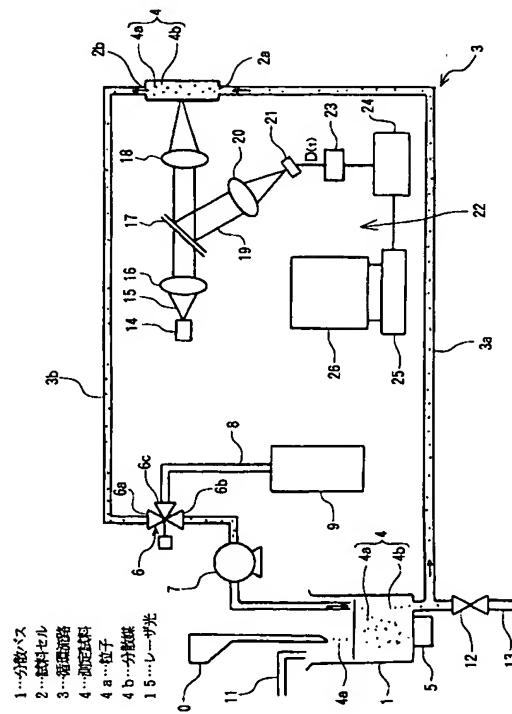
(71)出願人 000155023  
株式会社堀場製作所  
京都府京都市南区吉祥院宮の東町2番地  
(72)発明者 梅沢 賢  
京都府京都市南区吉祥院宮の東町2番地  
株式会社堀場製作所内  
(72)発明者 山口 哲司  
京都府京都市南区吉祥院宮の東町2番地  
株式会社堀場製作所内  
(74)代理人 100074273  
弁理士 藤本 英夫

(54)【発明の名称】 動的光散乱式粒径分布測定装置

(57)【要約】

【課題】 粒径分布測定前に測定に供される試料濃度を測定し、所望の測定濃度に達するまで自動的に試料を希釈するようにして、所定の粒径分布測定を効率よく行うことができるようとした動的光散乱式粒径分布測定装置を提供すること。

【解決手段】 試料セル2内に、分散媒4b中に粒子4aを分散させた測定試料4を収容し、この測定試料4に対してもレーザ光15を照射し、前記粒子4aにより散乱された光の周波数強度分布に基づいて粒径分布を求めるようにした動的光散乱式粒径分布測定装置において、前記分散媒4bと粒子4aが供給され、分散媒4b中に粒子4aを分散させるための分散バス1と前記試料セル2とを循環流路3で接続するとともに、粒径分布測定に先立って、前記分散バス1から試料セル2に対して測定試料4を供給し、この測定試料4に対してレーザ光15を照射し、そのとき得られる散乱光強度に基づいて前記測定試料4の濃度を測定し、この測定された濃度を予め設定されている目標濃度と比較し、この比較結果に基づいて前記測定試料4の濃度調整を行えるようにした。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 試料セル内に、分散媒中に粒子を分散させた測定試料を収容し、この測定試料に対してレーザ光を照射し、前記粒子により散乱された光の周波数強度分布に基づいて粒径分布を求めるようにした動的光散乱式粒径分布測定装置において、前記分散媒と粒子が供給され、分散媒中に粒子を分散させるための分散バスと前記試料セルとを循環流路で接続するとともに、粒径分布測定に先立って、前記分散バスから試料セルに対して測定試料を供給し、この測定試料に対してレーザ光を照射し、そのとき得られる散乱光強度に基づいて前記測定試料の濃度を測定し、この測定された濃度を予め設定されている目標濃度と比較し、この比較結果に基づいて前記測定試料の濃度調整を行えるようにしたことを特徴とする動的光散乱式粒径分布測定装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 この発明は、動的光散乱式粒径分布測定装置に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 粒径分布測定方法の一つに、動的光散乱式粒径分布測定装置を用いるものがある。この動的光散乱式粒径分布測定装置は、試料セル内に、分散媒中に粒子を分散させた測定試料を収容し、この測定試料に対してレーザ光を照射し、前記粒子により散乱された光の周波数強度分布に基づいて粒径分布を求めるもので、従来の有機顔料やセラミックスなどに加えて、近時においては、半導体ウェハやハードディスクの研磨剤や、インクジェットプリンタなど先端材料の研究開発の現場におけるニーズが高まっている。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】 ところで、上記動的光散乱式粒径分布測定装置は、従来においては、測定の都度、試料セルに対して測定試料を供給する所謂バッチ処理が主流であるとともに、測定装置の測定可能濃度が非常に低く、測定試料として低濃度のものまたは高濃度のものを希釈して用いる必要があったため、試料を測定可能な範囲の濃度にまで自動的に希釈する手法が採用されることもあった。これは、従来においては、この種の装置を用いるユーザにおいて、希釈によって測定するノウハウやデータベースを多く持っていたことにもその原因があると思われる。

【0004】 そして、前記試料を希釈するに際しては、従来、試料を定量的に採取し、この試料に対して100倍あるいは1000倍と言うように希釈液を定量的に注入する方法が採用されていた。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、上記手法は、測定装置の測定可能濃度に測定試料を希釈調整することが目的であり、凝集しやすい試料（粒子）におい

ては、希釈による凝集の影響を受けたまま測定されることになり、粒子の実際の現場における使用状態と異なった状態における測定になる場合もあった。そして、前記凝集が生じた状態で粒径分布測定を行うと、散乱光強度に大きな変化を生じたり、希釈しても散乱光強度が微弱となり、所定の測定を行えないことが生ずる。

【0006】 この発明は、上述の事柄に留意してなされたもので、その目的は、粒径分布測定前に測定に供される試料濃度を測定し、所望の測定濃度に達するまで自動的に試料を希釈するようにして、所定の粒径分布測定を効率よく行うことができるようとした動的光散乱式粒径分布測定装置を提供することである。

## 【0007】

【課題を解決するための手段】 上記目的を達成するため、この発明では、試料セル内に、分散媒中に粒子を分散させた測定試料を収容し、この測定試料に対してレーザ光を照射し、前記粒子により散乱された光の周波数強度分布に基づいて粒径分布を求めるようにした動的光散乱式粒径分布測定装置において、前記分散媒と粒子が供給され、分散媒中に粒子を分散させるための分散バスと前記試料セルとを循環流路で接続するとともに、粒径分布測定に先立って、前記分散バスから試料セルに対して測定試料を供給し、この測定試料に対してレーザ光を照射し、そのとき得られる散乱光強度に基づいて前記測定試料の濃度を測定し、この測定された濃度を予め設定されている目標濃度と比較し、この比較結果に基づいて前記測定試料の濃度調整を行えるようにしている。

【0008】 上記動的光散乱式粒径分布測定装置においては、測定に供される試料を、希釈したい濃度（または濃度範囲）まで自動的に希釈することができる。そして、希釈による試料の状態変化を防止しながら濃度の確認を行えることができるので、希釈しすぎになつたり希釈不足を生ずることがない。

## 【0009】

【発明の実施の形態】 発明の実施の形態を、図面を参照しながら説明する。図1～図5は、この発明の一つの実施例を示す。まず、図1は、この発明の動的光散乱式粒径分布測定装置の一例を概略的に示すもので、この図において、1は分散バス、2は試料セルで、両者1、2は循環流路3で接続されている。

【0010】 前記分散バス1は、例えは円筒状の液槽よりなり、測定対象試料である粒子4aとこれを分散させる分散媒4bとを混合して測定試料4とするもので、その底部外部には、発振器によって振動する超音波振動子5が設けられており、分散バス1内で粒子4aが凝集するのを防止するようにされている。

【0011】 前記試料セル2は、所謂フローセルよりなり、その一端に試料入口2aが形成され、他端に試料出口2bが形成されている。

【0012】 前記循環流路3は、一端が分散バス1の底

部に接続され、他端が試料セル2の試料入口2aに接続された往路管3aと、一端が試料セル2の試料出口2bに接続され、他端が分散バス1の上部において分散バス1内に開口する復路管3bとから構成されている。

【0013】前記分散バス1側の構成を説明すると、復路管3bの下流側には、三方電磁弁6と循環用ポンプ7が設けられており、より上流側に位置する三方電磁弁6は、その第1、第2のポート6a、6bが復路管3bにそれぞれ接続され、第3のポート6cには管8を介して分散媒貯留槽9が接続されている。そして、三方電磁弁6は、例えば、電源オフ時にはポート6b、6cが連通し、電源オン時にはポート6a、6bが連通するよう構成されている。また、分散バス1の上部には、別途秤量された粒子4aを分散バス1内に供給する粒子供給ホッパー10と、分散剤を分散バス1内に供給する分散剤供給管11が設けられている。さらに、往路管3aの分散バス1の底部に近い部分には、開閉弁12を備えた排水管13が分岐接続されている。

【0014】なお、前記分散媒4bとしては、例えば水(純水)、エタノール、油などの液体が用いられるが、測定対象である粒子4aの種類によって適宜使い分けられる。また、前記分散剤は、粒子4aが分散媒4b中ににおいて分散しやすくするもので、例えば界面活性剤など粒子どうしを反発させるもので、必要により供給される。

【0015】そして、前記試料セル2側の構成を説明すると、14は試料セル2の一側に設けられるレーザ光源で、このレーザ光源14と試料セル2との間の光路には、レーザ光源14からのレーザ光15をコリメートするレンズ16、ビームスプリッタ17、集光レンズ18がこの順で設けられている。前記ビームスプリッタ17は、例えば中央にレーザ光15を通過させる孔が設けられ、その反射面が試料セル2方向に形成されたミラーよりなり、レーザ光源14を発したレーザ光15の光軸と例えば45°の角度をなすように設けられており、前記孔を通過したレーザ光15が試料セル2内の粒子4bによる散乱光のドップラーシフトによって生じた干渉光19を90°以下の適宜の角度曲げて反射するように構成されている。そして、ミラー17で反射された干渉光19の光路にはこれを集光するレンズ20と、前記干渉光19を電気的な検出信号D(t)に変換する光検出器21が設けられている。

【0016】また、22は信号処理部で、前記光検出器21の出力D(t)を必要により増幅しデジタル信号に変換処理する信号処理部23、この信号処理部23から出力される検出信号D(t)をデータ処理して粒径分布を求めるCPU24、装置の各部を制御したり、前記CPU24における処理結果を表示するための画像処理など種々の処理を行うパソコン25などによりなり、パソコン25には、粒径分布など処理結果を表示したり、各

種の制御画面を表示するための表示装置26が付設されている。

【0017】次に、上記構成の動的光散乱式粒径分布測定装置の作動について、図2～図5をも参照しながら説明する。この実施例の動的光散乱式粒径分布測定装置は、以下の作動を、パソコン25に内蔵されているプログラムにしたがって自動的に行う。

【0018】(1)まず、開閉弁12を閉状態にして、秤量された粒子4aおよび分散媒4bを分散バス1内に投入する(図2のステップS1)。分散媒4bの投入は、三方電磁弁6がオフの状態(ポート6b、6cが連通している状態)でポンプ7を適宜時間オンすることにより適宜量の分散媒4bが分散バス1内に供給される。このとき、必要に応じて分散剤を適量投入してもよい。

【0019】(2)三方電磁弁6をオンにして、ポート6a、6bを連通させることにより循環流路3が開成され、ポンプ7をオンすることにより、分散バス1内の粒子4aおよび分散媒4bは、往路管3a、試料セル2、復路管3b、三方電磁弁6およびポンプ7を経て分散バス1に戻るようにして循環流路3内を循環し、これによって、粒子4aが分散媒4b内に分散して十分に攪拌混合された測定試料4になる(図2のステップS2)。この場合、超音波振動子5を動作させ、分散バス1内で粒子4aが凝集するのを防止するようにしてよい。

【0020】(3)前記測定試料4の循環を適宜行い、これを十分に攪拌混合した後、ポンプ7をオフにした状態で、レーザ光源14をオンにしてレーザ光15を試料セル2内の測定試料4に照射する。すなわち、レーザ光源14から出たレーザ光15は、コリメートレンズ16、ビームスプリッタ17および集光レンズ18を経て試料セル2内に集光する。このとき、一部のレーザ光はセル壁面を通過して、分散媒4b中に分散し、ブラウン運動する粒子4aに当たり、前記ブラウン運動によってドップラーシフトしたレーザ光(散乱光)が散乱する。一方、一部のレーザ光はセル壁面で散乱(非散乱光)して、もとの周波数のレーザ光が逆方向に進む。前記散乱光と非散乱光は互いに干渉し合って干渉光となり、集光レンズ18、ビームスプリッタ17、レンズ20を経て光検出器21上に集光する。

【0021】前記干渉光は、光検出器21において電気的な検出信号D(t)に変換され、信号処理部23において適宜処理され、デジタル化された光散乱データがCPU24に取り込まれる。前記光散乱データは、図3に示すように、測定試料4の濃度に応じた振幅Amを有しており、この振幅Amに基づいて測定試料4の濃度(測定濃度)を得ることができる(図2のステップS3)。なお、前記光散乱データをCPU24において高速フーリエ変換してパワースペクトルを求め、このパワースペクトルに基づいて粒子4aの粒径分布状態を求めるようにしてよい。

【0022】そして、パソコン25において、測定担当者が、図4に示す画面を用いて目標濃度（電圧値）を設定する。図4は、自動濃度調整を行うときの表示装置26における画面の一例を示し、この例では、目標濃度を表す電圧値は12.50Vである。そして、前記測定濃度を目標濃度と比較する（図2のステップS4）。ここで、図5に示すように、測定濃度（測定濃度電圧）が目標濃度（目標濃度電圧）と一致しているときは、測定試料濃度の調整が終了したことになり（図2のステップS5）、粒径分布測定に移行する。この粒径分布測定は、前記（3）で説明したように、レーザ光源14をオンにしてレーザ光15を試料セル2内の測定試料4に照射し、そのとき得られる、粒子4a粒子により散乱された光の周波数強度分布に基づいて粒径分布を求めるようすればよい。

【0023】これに対して、前記測定濃度が目標濃度と一致していないときは、図2に示すように、ステップS2に戻り、測定試料4の濃度調整をさらに行う必要がある。すなわち、前記測定濃度（測定濃度電圧）が、例えば図6の画面例に示すように、12.50Vというように、目標濃度（目標濃度電圧）10.50Vより大きいときは、希釈倍率を設定し、測定試料4の調整を行うのである。

【0024】具体的には、開閉弁12を1～2秒程度開いて分散バス1内の測定試料4の一部を排出した後、この排出量に等しい分散媒4bを分散媒貯留槽9から分散バス1に供給して希釈するのである。このとき、分散剤を適宜量供給してもよい。その後、前記（2）に記載した手法により、粒子4aおよび分散媒4bよりなる測定試料4を循環流路3を循環させることにより、十分に攪拌混合された測定試料4とする。

【0025】そして、ステップS3に示すように、測定試料4の濃度を再度測定するのである。

【0026】以下、測定試料4の濃度が目標濃度になるまで、上記作業を繰り返す。なお、測定試料4の濃度が目標濃度よりも小さい場合、粒子4aを分散バス1に加えるようにすればよい。また、目標濃度として、土の多少の許容範囲を設けておき、測定濃度がこの目標濃度の許容範囲内に入った場合に、粒径分布測定に移行するようにしてよい。

【0027】上述のように、この発明の動的光散乱式粒径分布測定装置においては、粒径分布測定に先立って、測定試料4の濃度を散乱光強度に基づいて確認し、試料濃度が測定可能範囲内にあるか否かを確認しながら希釈しているので、希釈しすぎになったり希釈不足を生ずることがない。そして、測定試料4が所定の濃度になった状態で粒径分布測定を行うことができるので、精度の高

い測定結果を得ることができ、所定の粒径分布測定を効率よく行うことができる。

【0028】特に、分散バス1と試料セル2とを循環流路3によって接続し、測定試料4を循環流路3内を繰り返し循環させることができるので、粒子4aと分散媒4bの混合攪拌が確実に行われるとともに、凝集による粒径の変化やそれに伴う散乱光強度の急激な変化を抑制することができる。

【0029】なお、測定試料4の希釈方法として、濃度を定量的に2の倍数ずつ希釈するようにしてもよい。すなわち、分散バス1内の測定試料4の量を分散バス1に設けたセンサ（図示していない）によってモニターして、半量排水し、この排出量と同量の分散媒4bを供給して、2倍希釈し、この2倍希釈を回数から希釈倍率を簡単に求めるようにしてもよい。

【0030】

【発明の効果】以上説明したように、この発明の動的光散乱式粒径分布測定装置においては、分散バスと試料セルとを循環流路で接続するとともに、粒径分布測定に先立って、記分散バスから試料セルに対して測定試料を供給し、この測定試料に対してレーザ光を照射し、そのとき得られる散乱光強度に基づいて前記測定試料の濃度を測定し、この測定された濃度を予め設定されている目標濃度と比較し、この比較結果に基づいて前記測定試料の濃度調整を行えるようにしているので、測定試料を希釈したい濃度にまで効率よく、自動的に（無人で）希釈することができる。そして、希釈による状態変化を防止しながら濃度の確認を行うことができ、したがって、最適な濃度状態で所望の粒径分布測定を行うことができ、精度の高い測定を効率よく行うことができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】この発明の動的光散乱式粒径分布測定装置の一例を概略的に示す図である。

【図2】前記測定装置による粒径分布測定に先立って行われる測定試料の調整手順の一例を示すフローチャートである。

【図3】検出信号（光散乱データ）の一例を示す図である。

【図4】自動濃度調整を行うための画面の一例を示す図である。

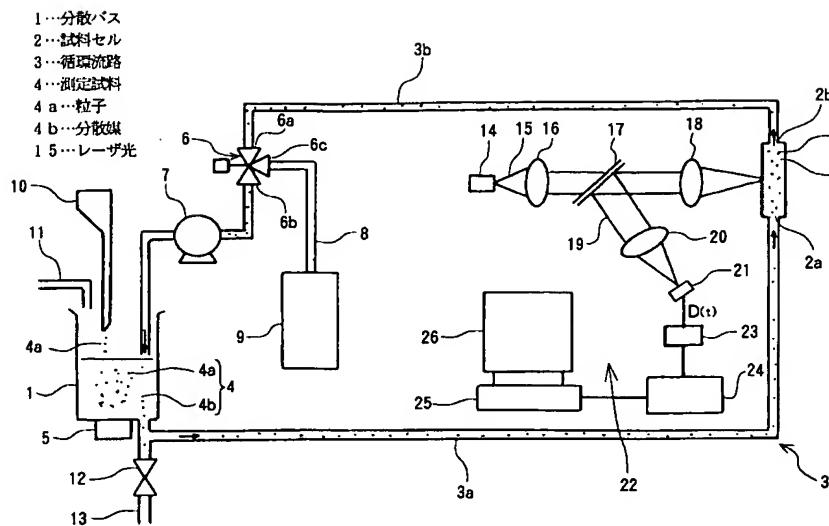
【図5】自動濃度調整を行うための画面の一例を示す図である。

【図6】自動濃度調整を行うための画面の一例を示す図である。

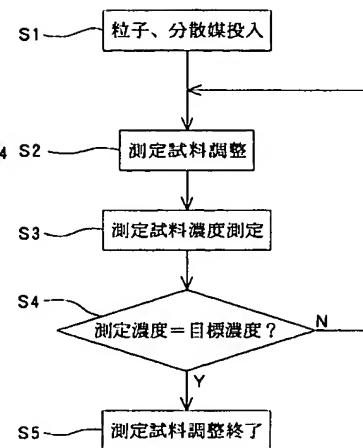
【符号の説明】

1…分散バス、2…試料セル、3…循環流路、4…測定試料、4a…粒子、4b…分散媒、15…レーザ光。

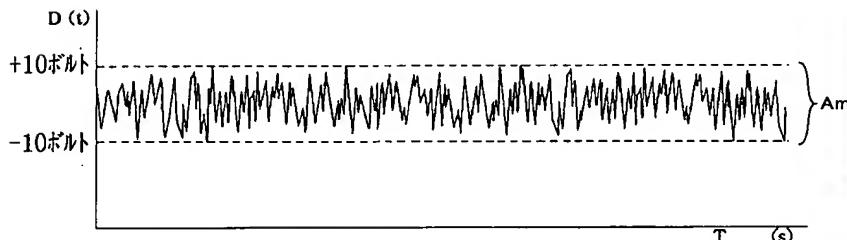
【図1】



【図2】



【図3】



【図5】



【図4】



【図6】

